



TITLE:

真空内液滴標的を用いた重イオン
トラック内反応に関する研究(
Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

北島, 謙生

CITATION:

北島, 謙生. 真空内液滴標的を用いた重イオントラック内反応に関する研究. 京都大学, 2019, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2019-03-25

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k21763>

RIGHT:

京都大学	博士（工学）	氏名	北 島 謙 生
論文題目	真空内液滴標的を用いた重イオントラック内反応に関する研究		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>本論文は、液体物質の高速重イオン照射効果において、イオンの飛跡（トラック）内に誘起される物理化学反応の解明を目的に、真空内微小液滴を用いた高感度な二次イオン質量分析法を開発し、アルコールや生体分子含有水溶液など種々の液体物質に対するトラック内反応物の生成機構に関する研究をまとめたものであり、全 6 章からなる。</p> <p>第 1 章は序論であり、まず、本研究の背景となる高速重イオンと液体物質の相互作用研究の生物医学分野への応用に向けた、放射線物理、放射線化学的観点からの基礎研究の現状と解決すべき課題を述べている。次に、本研究の主眼である液体物質の重イオントラック反応について、トラック内の中間生成物の生成機構を解明する意義について論じている。最後に、本論文の概要について述べている。</p> <p>第 2 章は本研究で開発した真空内微小液滴生成法について述べている。液滴の生成において超音波霧化法を用い、流体力学に基づいたシミュレーションにより大気圧から真空への液滴導入の最適条件を考察している。次に、生成した液滴の性質について、熱力学的考察により真空内液滴の温度を算出し、本研究に用いた各液体物質の液相状態を評価している。さらに、液滴の径について、イオン散乱法による実験結果と理論から算出される結果が一致することを述べている。これらの結果を踏まえて、液滴の高密度化と高真空保持の実現による二次イオン質量分析の感度向上について論じている。</p> <p>第 3 章は重イオントラック内の物理化学的反応について述べている。エタノール液滴を用いて、正および負の二次イオンの測定により、トラック内の中間生成物を考察している。正の二次イオンにおいて、エタノール分子間の脱水反応による生成物の微量分析に成功している。これは高感度分析により実現した成果である。負の二次イオンにおいて、多様な反応生成物が検出され、エタノール分子の解離イオンやラジカル反応に伴う生成物など、重イオントラック内の高温かつ高電離状態といった特殊な環境に起因する複雑な構造を持つ反応物の生成機構を考察している。さらに、エタノールクラスターイオンの生成について、特に、プロトン付加・脱離に伴って放出されるイオンの運動エネルギーが異なることを見出し、この原因がトラック表面の電荷密度に起因していることを述べている。</p> <p>第 4 章は重イオントラック内反応生成物と電子的阻止能の関係について述べている。メタノール液滴からの正および負の二次イオン（解離イオン、クラスターイオン、反応生成物）について、それらの収量の入射イオンのエネルギー依存性を測定している。入射イオンのエネルギーに対する電子的阻止能を SRIM コードから算出し、二次イオン収量を電子的阻止能のべき乗関数で整理した結果、二次イオンの種類毎、すなわち、解離イオン、クラスターイオンおよび反応生成物に対してべき乗の指数が異なる</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	北 島 謙 生
<p>ことを述べている。さらに、二次イオン収量の電子的阻止能に対するべき乗の指数は正と負の二次イオンにおいて異なる値を示すこと、べき乗の指数と二次イオンの質量の間にはある相関があることを見出している。この原因について、二次イオンの種類がイオントラックのエネルギー密度に依存すると仮定した場合、べき乗の指数はトラック内のエネルギー密度を反映していることを提唱している。</p> <p>第5章は水中における生体分子の重イオン照射による損傷過程について述べている。グリシン水溶液の液滴を標的に用いて、様々な入射エネルギーの重イオン照射によるグリシン分子の解離に伴う正および負の二次イオンの生成過程について、水の電離から生じた二次電子の影響を論じている。液体の水の中で生じる二次電子の生成断面積の入射エネルギー依存性をモデル計算から算出し、二次イオン収量との相関を調べている。その結果、正と負の解離イオン生成には、異なるエネルギーの二次電子が寄与していること、具体的には、グリシン分子の $C-C_{\alpha}$ 結合が切れたことによる正の解離イオンは高エネルギー電子の直接電離過程により生じ、一方、負の解離イオンは低エネルギー電子との相互作用により生じることを明らかにしている。特に、グリシン分子から水素脱離した負イオンの生成は、これまでの研究で明らかにされた気相分子の解離性電子付着過程の結果と類似しており、水中の生体分子損傷においても同様な過程が生じることを述べている。</p> <p>第6章は総括であり、本論文で得られた成果について要約している。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、高速重イオンの生物医学への応用に向けた基礎研究として、液体物質への重イオン照射によって誘起されるトラック内の物理化学的反応の解明を目的に研究した成果についてまとめたものである。液体物質に微小液滴を用いて、高真空下の液体物質からの二次イオン質量分析法を開発し、トラック内反応物の生成機構を解明している。得られた主な成果は次のとおりである。

1. 液体物質の重イオントラック内反応生成物の高感度分析法の開発について、液体物質を真空中に導入する新たな方法として、超音波霧化法により作製した微小液滴を、流体力学に従い大気から真空中に輸送する方法を確立した。この方法により高真空下の液体物質からの二次イオン質量分析を実現し、エタノール液滴を用いて、低バックグラウンドの二次イオン質量スペクトルを得ることに成功するとともに、これまでの研究で検出できなかった反応生成物の測定を可能にした。
2. 重イオン照射による液体物質からの二次イオンの生成過程について、重イオン照射に伴う電子励起と二次イオン生成の相関を調べた。メタノール液滴を用いて、正および負の二次イオンの生成過程が異なる電子励起エネルギーで生成していることを明らかにした。さらに、二次イオンの質量と電子励起エネルギーに相関があることを見出し、その原因がイオントラック内のエネルギー密度に起因していることを明らかにした。
3. 水中における重イオン照射による生体分子の損傷について、生体分子の中で構造が最も単純なグリシンの水溶液の微小液滴を用いて、グリシン分子の解離によって生じる正および負のイオンの生成過程を調べた。グリシン分子の解離が分子周辺に存在する水の電離によって生じた二次電子が影響していること、正の二次イオン生成には高エネルギー電子による直接電離過程が関与し、一方、負の二次イオン生成には低エネルギー電子による解離性電子付着過程が関与していることを明らかにした。

本論文は、真空内微小液滴による液体物質の高感度二次イオン質量分析法を開発し、イオントラック内の反応を直接観察する新たな試みにより、高速重イオンと液体の相互作用研究の新たな側面を開拓したもので、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成31年2月27日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。